

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: 82110859.4

51 Int. Cl.³: **C 07 D 251/34**
A 01 N 43/64

22 Anmeldetag: 24.11.82

30 Priorität: 03.12.81 DE 3147879
 16.01.82 DE 3201229

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
 15.08.83 Patentblatt 83/24

64 Benannte Vertragsstaaten:
 AT BE CH DE FR GB IT LI NL SE

71 Anmelder: BASF Aktiengesellschaft
 Carl-Bosch-Strasse 38
 D-6700 Ludwigshafen(DE)

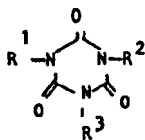
72 Erfinder: Parg, Adolf, Dr.
 Paray-le-Monial-Strasse 8
 D-6702 Bad Dürkheim(DE)

72 Erfinder: Hamprecht, Gerhard, Dr.
 Rote-Turm-Strasse 28
 D-6940 Weinheim(DE)

72 Erfinder: Wuerzer, Bruno, Dr. Dipl.-Landwirt
 Ruedigerstrasse 13
 D-6701 Otterstadt(DE)

54 1,3,5-Triazinone, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses.

57 Die Erfindung betrifft 1,3,5-Triazinone der Formel



In der R¹, R² und R³ die in der Beschreibung genannten Bedeutungen haben, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses.

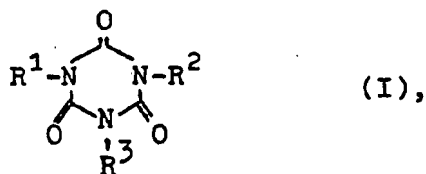
EP 0 081 142 A2

1,3,5-Triazinone, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre
Verwendung zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses

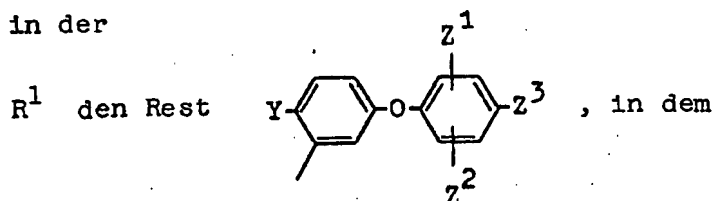
Die Erfindung betrifft 1,3,5-Triazinone, Verfahren zu
5 ihrer Herstellung, Herbizide, die diese Verbindungen als
Wirkstoffe enthalten, sowie ein Verfahren zur Bekämpfung
unerwünschten Pflanzenwuchses mit diesen Wirkstoffen.

Es ist bekannt, phoxysubstituierte N-Phenyl-1,3,5-tria-
10 zinone, wie 1-[4-(2'-Chlor-4'-trifluormethylphenoxy)-
-phenyl]-3-methyl-1,3,5-triazin-2,4,6-(1H,3H,5H)-trion,
als Arzneimittel, insbesondere als Coccidiostatica, zu
verwenden (DE-OS 22 46 109).

15 Es wurde gefunden, daß 1,3,5-Triazinone der Formel



in der



Z¹ und Z² jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff,
Halogen, Nitro, Cyano, Carboxyl, Alkyl, Halogen-
alkyl oder Alkoxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoff-
30 atomen,

Z³ Halogen, Nitro, Cyano, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy,
Halogenalkoxy, Alkylmercapto, Halogenalkylmercapto,
Alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl
oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Koh-

35 H/HB

lenstoffatomen und

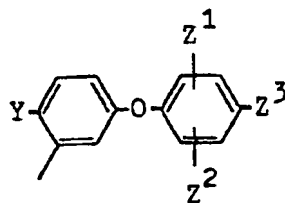
Y Wasserstoff, Halogen, Cyano oder Nitro bedeuten,

R² Wasserstoff, einen gesättigten oder ungesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, einen durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Mercapto, Alkoxy oder Alkylmercapto mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, Phenylmercapto, Alkyl- oder Dialkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in einer Alkylgruppe substituierten gesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, einen gegebenenfalls durch Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Cycloalkylrest mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, einen gegebenenfalls durch Halogen, Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Nitro, Cyano, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylmercapto mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Phenylrest oder einen gegebenenfalls durch Halogen substituierten Benzylrest und

R³ Wasserstoff, Alkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls halogensubstituiertes Acyl mit bis zu 7 Kohlenstoffatomen, ein Alkalimetallion oder ein gegebenenfalls alkyliertes Ammoniumion

bedeuten, sehr gute herbizide und gegenüber Kulturpflanzen selektive Eigenschaften haben.

Im Rest



für R¹

in der Formel I können Z^1 und Z^2 jeweils unabhängig voneinander beispielsweise Wasserstoff, Halogen, wie Fluor, Chlor, Brom, Jod, Nitro, Cyan, Carboxyl, Alkyl, Halogenalkyl oder Alkoxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl, n-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Fluormethyl, Trichlormethyl, Dichlormethyl, Chlormethyl, Difluorchlormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Fluorethyl, 2-Fluorethyl, 2,2,2-Trichlorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 1,1,2,2-Tetrafluorethyl, 1,1,2-Trifluor-2-chlorethyl, 1,1,2,2,2-Pentafluorethyl, Methoxy, Ethoxy, n-Propyloxy, i-Propyloxy oder tert.-Butyloxy, und Z^3 Halogen, wie Fluor, Chlor, Brom, Jod, Nitro, Cyan, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylmercapto, Halogenalkylmercapto, Alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl, n-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Fluormethyl, Trichlormethyl, Dichlormethyl, Chlormethyl, Difluorchlormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Fluorethyl, 2-Fluorethyl, 2,2,2-Trichlorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 1,1,2,2-Tetrafluorethyl, 1,1,2-Trifluor-2-chlorethyl, 1,1,2,2,2-Pentafluorethyl, Methoxy, Ethoxy, n-Propyloxy, i-Propyloxy, tert.-Butyloxy, Trichlormethoxy, Trifluormethoxy, 1-Chlorethoxy, 2-Chlorethoxy, 1-Fluorethoxy, 2-Fluorethoxy, 2,2,2-Trichlorethoxy, 2,2,2-Trifluorethoxy, 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy, 1,1,2,2,2-Pentafluorethoxy, Methylmercapto, Ethylmercapto, Trichlormethylmercapto, Trifluormethylmercapto, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Trifluormethylsulfonyl bedeuten, Y. kann beispielsweise für Halogen, wie Fluor, Chlor, Brom, Jod, sowie für Wasserstoff, Cyano oder Nitro stehen.

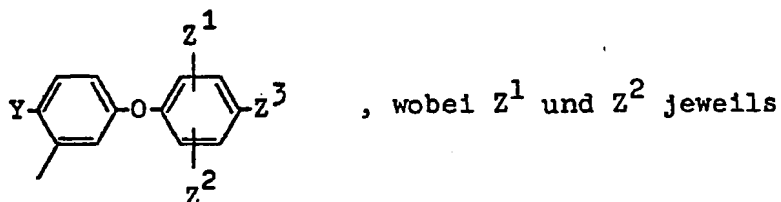
- R^2 in Formel I steht für Wasserstoff, einen gesättigten oder ungesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, beispielsweise für einen Alkylrest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise mit bis zu 12, insbesondere mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, für einen Alkenyl- oder Alkynylrest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise mit bis zu 12, insbesondere mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl, sec.-Butyl, tert.-Butyl, n-Pentyl, tert.-Amyl, n-Hexyl, Pentyl-3, 1,2-Dimethyl-n-propyl, 1,3-Dimethyl-n-butyl, 1-Ethyl-2-methyl-n-propyl, 1,2,2-Trimethyl-n-propyl, 1,2-Dimethyl-4-hexyl, Allyl, Methallyl, Crotyl, 2-Ethyl-hex-2-enyl, Hex-5-enyl, 2-Methyl-but-2-enyl, 2-Methyl-but-3-enyl, But-1-en-3-yl, 2-Methyl-but-1-en-4-yl, 2-Methyl-but-2-en-4-yl, 3-Methyl-but-1-en-3-yl, Propargyl, But-1-in-3-yl, But-2-inyl, für einen durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Mercapto oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten gesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, beispielsweise einen durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Mercapto oder Alkoxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen substituierten Alkylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie 2-Chlorethyl, 2-Chlor-n-propyl, 3-Chlor-n-propyl, 2-Chlor-sec.-butyl, 2-Chlor-isobutyl, 2-Fluor-sec.-butyl, 2-Fluor-isobutyl, 2-Fluor-isopropyl, Chlor-tert.-butyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 1-Cyanomethyl, 2-Cyanomethyl, 2-Hydroxyethyl, 3-Hydroxy-n-propyl, 2-Mercaptoethyl, 3-Mercapto-n-propyl, 2-Methoxyethyl, 2-Ethoxyethyl, 3-Methoxy-n-propyl, 2-Methoxy-isopropyl, 3-Methoxy-n-butyl, 1-Methoxy-sec.-butyl, Methoxy-tert.-butyl, Ethoxy-tert.-butyl, 2-Methoxy-n-butyl, 4-Methoxy-n-butyl, oder für einen gegebenenfalls durch Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoff-

atomen substituierten Cycloalkylrest mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, wie Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, 4-Ethoxycyclohexyl.

- 5 R^2 steht außerdem für einen durch Phenylmercapto, Alkylmercapto mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen oder Alkyl- oder Dialkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in einer Alkylgruppe substituierten gesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, beispielsweise einen durch Phenylmercapto oder Alkylmercapto mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Alkyl- oder Dialkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in einer Alkylgruppe substituierten Alkylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie
- 10 2-Methylmercapto-ethyl, 2-Ethylmercapto-ethyl, 3-Methylmercapto-n-propyl, 3-Methylmercapto-n-butyl, 1-Methylmercapto-sec.-butyl, Methylmercapto-tert.-butyl, 2-Methylmercapto-n-butyl, 2-Methylaminoethyl, 2-Ethylaminoethyl, 2-Dimethylaminoethyl, 2-Diethylaminoethyl, 2-Dimethylamino-n-propyl, 3-Dimethylamino-n-propyl, 4-Dimethylamino-n-butyl, oder für einen gegebenenfalls durch Halogen, Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Nitro, Cyano, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylmercapto mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Phenylrest oder
- 25 einen gegebenenfalls durch Halogen substituierten Benzylrest, wie Phenyl, 4-Chlorphenyl, 3,4-Dichlorphenyl, o-, m-, p-tert.-Butylphenyl, o-, m-, p-Methoxyphenyl, o-, m-, p-Methylphenyl, 4-Methoxy-3-chlorphenyl, 2-Methyl-4-chlorphenyl, 4-Nitrophenyl, 4-Nitro-2-chlorphenyl, o-, m-,
- 30 p-Cyanophenyl, o-, m-Trifluormethylphenyl, 2-Chlor-4-trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethoxyphenyl, 4-Trifluormethylmercaptophenyl, 3-Trifluormethylmercaptophenyl, Benzyl, 2,6-Dichlorbenzyl, 2-Chlor-6-fluorbenzyl, 2,6-Difluor-benzyl, o-, m-, p-Chlorbenzyl.
- 35

R^3 kann Wasserstoff, Alkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls halogensubstituiertes Acyl mit bis zu 7 Kohlenstoffatomen, ein Alkalimetallion oder ein gegebenenfalls alkyliertes Ammoniumion, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, 2-Butyl, Formyl, Acetyl, Chloracetyl, Benzoyl, Natrium, Kalium, Ammonium, Methylammonium, Dimethylammonium, Trimethylammonium oder Tetramethylammonium bedeuten.

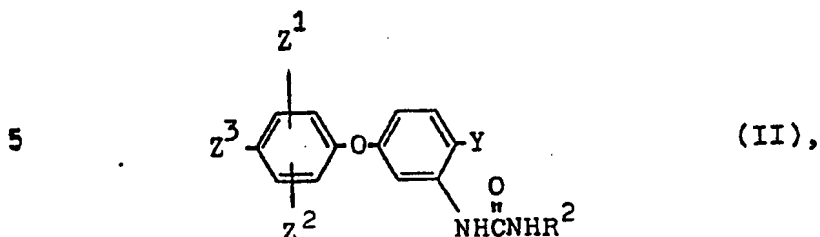
Bevorzugte 1,3,5-Triazinone sind Verbindungen der Formel I in der R^1 den Rest



unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom oder Cyan, Z^3 Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylmercapto oder Trifluormethyl, vorzugsweise Trifluormethyl, und Y Brom oder Nitro, insbesondere Nitro, bedeuten, R^2 Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, durch Halogen, Cyano, Alkoxy oder Alkylmercapto substituiertes Alkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, durch Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Halogen substituiertes Phenyl oder durch Halogen substituiertes Benzyl, vorzugsweise Methyl, Ethyl, 2-Chlorethyl, 2-Cyanoethyl, 2-Methoxyethyl, 2-Methylmercaptoethyl, Cyclohexyl, 3,4-Dichlorphenyl, 3-Trifluormethylphenyl oder 4-Chlorbenzyl, insbesondere Methyl, 2-Chlorethyl, 2-Methoxyethyl oder 3,4-Dichlorphenyl, und R^3 Wasserstoff, Methyl oder Natrium bedeuten.

Die Verbindungen der Formel I mit R^3 = Wasserstoff können beispielsweise nach folgendem Verfahren hergestellt werden:

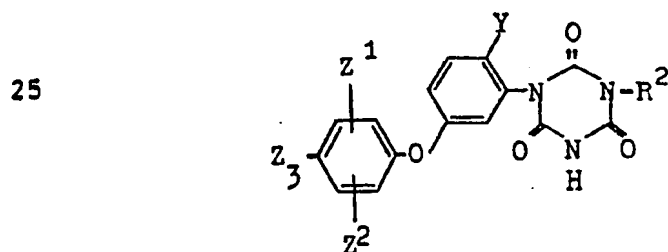
Man setzt den phenoxysubstituierten Harnstoff der Formel



10 in der Z^1 , Z^2 , Z^3 , Y und R^2 die oben genannten Bedeutungen haben, mit einem substituierten Carbonylisocyanat der Formel



15 in der R^4 für Halogen, eine Alkoxygruppe oder eine Aryloxygruppe steht, in einem inerten organischen Lösungsmittel, gegebenenfalls unter Zusatz eines Säureacceptors, bei Temperaturen zwischen -20 und bis $+180^\circ\text{C}$, vorzugsweise zwischen $+20$ und $+150^\circ\text{C}$, drucklos oder unter Druck, kontinuierlich oder diskontinuierlich, zu einem substituierten 1,3,5-Triazinon der Formel



30 in der Z^1 , Z^2 , Z^3 , Y und R^2 die obengenannten Bedeutungen haben, um.

Dieses kann dann gegebenenfalls mit einem Acylhalogenid der Formel $R^3\text{COX}$ oder einem Alkylhalogenid der Formel $R^3\text{X}$

35

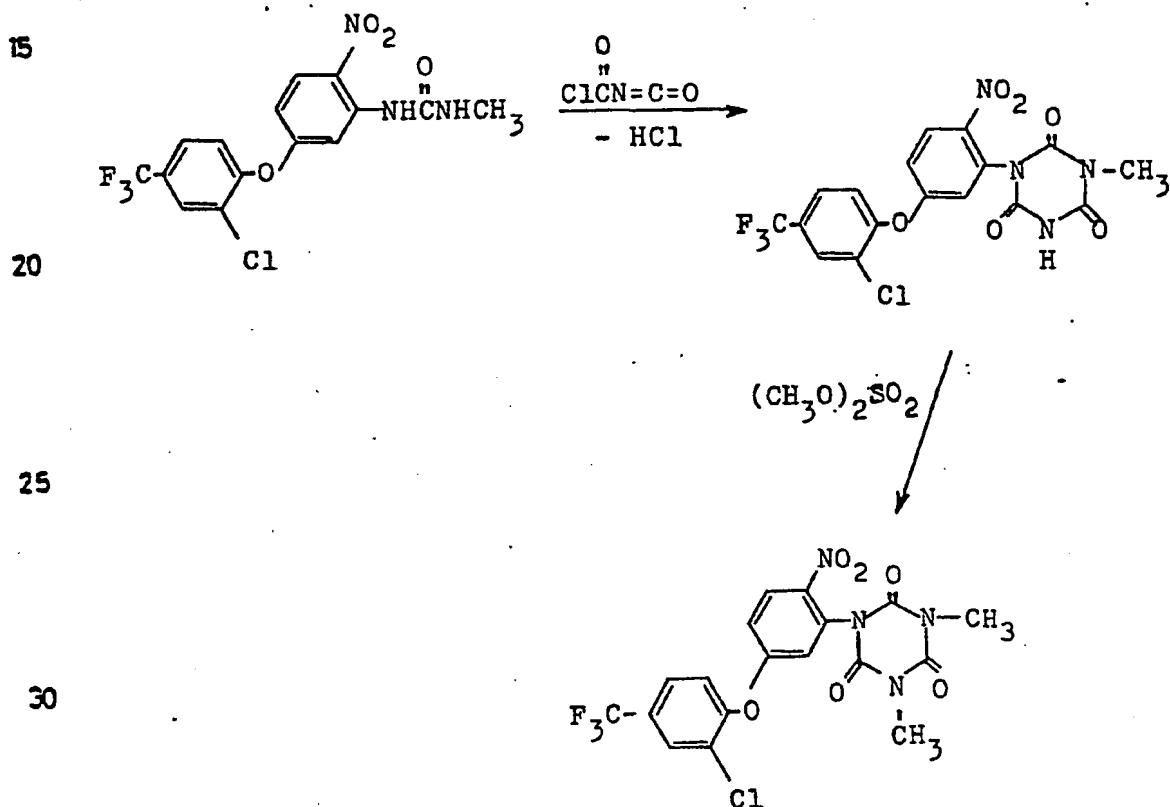
- oder einem Dialkylsulfat der Formel $(R^3O)_2SO_2$, wobei R^3 jeweils die obengenannten Bedeutungen, ausgenommen Wasserstoff, hat und X für Halogen steht, acyliert oder alkyliert oder gegebenenfalls mit einem Alkalialkoholat, einem Alkalihydroxid oder einem gegebenenfalls alkylierten Ammoniumhydroxid in ein Salz der Formel I überführt werden.

Verwendet man N-3-(2'-Chlor-4'-trifluormethylphenoxy)-6-nitro-phenyl-N'-methylharnstoff und Chlorcarbonyliso-

cyanat als Ausgangsstoffe sowie Dimethylsulfat als Alky-

lierungsmittel, so kann der Reaktionsablauf durch folgen-

des Formelschema wiedergegeben werden:



Man verwendet für die Umsetzung unter den jeweiligen Reaktionsbedingungen inerte organische Lösungsmittel. Als Lösungsmittel kommen z.B. in Betracht: Halogenkohlenwasserstoffe, insbesondere aromatische oder aliphatische Chlor-

5 kohlenwasserstoffe, z.B. Tetrachlorethylen, 1,1,2,2- oder 1,1,1,2-Tetrachlorethan, Dichlorpropan, Methylenchlorid, Dichlorbutan, Chloroform, Chlornaphthalin, Dichlornaphthalin, Tetrachlorkohlenstoff, 1,1,1- oder 1,1,2-Trichlorethan, Trichlorethylen, Pentachlorethan, o-, m-, p-Difluor-

10 benzol, 1,2-Dichlorethan, 1,1-Dichlorethan, 1,2-cis-Dichlorethylen, Chlorbenzol, Fluorbenzol, Brombenzol, Jodbenzol, o-, m-, p-Dichlorbenzol, o-, p-, m-Dibrombenzol, o-, m-, p-Chlortoluol, 1,2,4-Trichlorbenzol; Ether, z.B. Ethylpropylether, Methyl-tert.-butylether, n-Butylethylether,

15 Di-n-butylether, Diisobutylether, Diisoamylether, Diisopropylether, Anisol, Phenetol, Cyclohexylmethylether, Diethylether, Ethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran, Dioxan, β,β' -Dichlordiethylether; Nitrokohlenwasserstoffe, wie Nitromethan, Nitroethan, Nitrobenzol, o-, m-, p-Chlor-

20 nitrobenzol, o-Nitrotoluol; Nitrile, wie Acetonitril, Butyronitril, Isobutyronitril, Benzonitril, m-Chlorbenzonitril; aliphatische oder cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Heptan, Pinan, Nonan, o-, m-, p-Cymol, Benzin-

25 fraktionen innerhalb eines Siedepunktintervalles von 70 bis 190°C, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Dekalin, Petrol-ether, Hexan, Ligroin, 2,2,4-Trimethylpentan, 2,2,3-Trimethylpentan, 2,3,3-Trimethylpentan, Octan; Ester, z.B. Ethylacetat, Acetessigester, Isobutylacetat; Amide, z.B. Formamid, Methylformamid, Dimethylformamid; Ketone, z.B.

30 Aceton, Methylethylketon, und entsprechende Gemische. Zweckmäßigerweise verwendet man das Lösungsmittel in einer Menge von 100 bis 2.000 Gew.%, vorzugsweise von 200 bis 700 Gew.%, bezogen auf die Ausgangsstoffe.

Die bei der Reaktion entstehende Salzsäure entweicht gasförmig oder wird durch Säureacceptoren gebunden. Als Säureacceptoren können alle üblichen Säurebindemittel verwendet werden. Hierzu gehören vorzugsweise tertiäre Amine, Erdalkaliverbindungen, Ammoniumverbindungen und Alkaliverbindungen sowie entsprechende Gemische. Es können aber auch Zinkverbindungen verwendet werden. Es kommen z.B. folgende basische Verbindungen in Frage: Kaliumhydroxid, Natriumcarbonat, Lithiumhydroxid, Lithiumcarbonat, Natriumbicarbonat, Kaliumbicarbonat, Calciumhydroxid, Calciumoxid, Bariumoxid, Magnesiumhydroxid, Magnesiumoxid, Bariumhydroxid, Calciumcarbonat, Magnesiumcarbonat, Magnesiumbicarbonat, Magnesiumacetat, Zinkhydroxid, Zinkoxid, Zinkcarbonat, Zinkbicarbonat, Zinkacetat, Natriumformiat, Natriumacetat, Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Triisopropylamin, Tributylamin, Triisobutylamin, Tri-sec-butylamin, Tri-tert.-butylamin, Tribenzylamin, Tricyclohexylamin, Triamylamin, Diisopropylethylamin, Trihexylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Diethylanilin, N,N-Dipropyltoluidin, N,N-Dimethyl-p-aminopyridin, N-Methylpyrrolidon, N-Ethylpyrrolidon, N-Methylpiperidin, N-Ethylpiperidin, N-Methylpyrrolidin, N-Ethylpyrrolidin, N-Methylimidazol, N-Ethylimidazol, N-Methylpyrrol, N-Ethylpyrrol, N-Methylmorpholin, N-Ethylmorpholin, N-Methylhexamethylenimin, N-Ethylhexamethylenimin, Pyridin, Chinolin, -Picolin, β -Picolin, -Picolin, Isochinolin, Pyrimidin, Acridin, N,N,N',N'-Tetramethylethylen-diamin, N,N,N',N'-Tetraethylethylen-diamin, Chinoxalin, Chinazolin, N-Propyldiisopropylamin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, 2,6-Lutidin, 2,4-Lutidin, Trifurfurylamin, Triethylen-diamin.

Die Ausgangsstoffe werden z.B. in ungefähr stöchiometrischem Verhältnis zur Reaktion gebracht, d.h. Ausgangsstoff III kann z.B. in einem Überschuß bis zu 20 % (Mol%), bezogen auf II, eingesetzt werden.

Zweckmäßigerweise wird das Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der Formel I so durchgeführt, daß man den Ausgangsstoff II, gegebenenfalls in einem der vorgenannten Verdünnungsmittel vorlegt und dann den Ausgangsstoff III und gegebenenfalls einen Säureakzeptor gleichzeitig oder nacheinander zugibt. Man kann jedoch auch den Ausgangsstoff III in einem Verdünnungsmittel vorlegen und dann den Ausgangsstoff II und einen Säureakzeptor, gleichzeitig oder in beliebiger Reihenfolge, über zwei getrennte Zuführungen zugeben.

Die Umsetzung ist in vielen Fällen nach der Zugabe der Komponenten bereits abgeschlossen, andernfalls rührt man zu ihrer Beendigung noch 10 Minuten bis 10 Stunden bei -20 bis 180°C, vorzugsweise 20 bis 150°C, insbesondere 40 bis 100°C, nach.

Verwendet man ein Inertgas zur Entfernung des Halogenwasserstoffes, so rührt man zweckmäßigerweise 0,2 bis 10 Stunden bei 40 bis 100°C nach.

Aus dem Reaktionsgemisch wird der Endstoff I in üblicher Weise, z.B. nach Abdestillieren von Lösungsmittel oder überschüssigem Ausgangsstoff III oder direkt durch Absaugen, isoliert. Der verbleibende Rückstand wird in diesem Fall zur Entfernung saurer Verunreinigungen mit Wasser bzw. verdünntem Alkali gewaschen und getrocknet. Im Falle von mit Wasser nicht mischbaren Verdünnungsmitteln kann man auch direkt das Reaktionsgemisch mit Wasser bzw. mit

verdünnem Alkali extrahieren und dann trocknen und eingengen. Man kann jedoch auch den Rückstand in einem mit Wasser nicht mischbaren Lösungsmittel lösen und wie beschrieben waschen. Die gewünschten Endstoffe fallen hierbei in reiner Form an, gegebenenfalls können sie durch Umkristallisation, Chromatographie oder Destillation gereinigt werden.

Die Verbindungen der Formel I mit R^3 = Alkyl, Acyl, Alkalimetallion oder gegebenenfalls alkyliertes Ammoniumion können aus den entsprechenden Verbindungen der Formel I mit R^3 = Wasserstoff in an sich bekannter Weise hergestellt werden. Die Alkylierung erfolgt mittels Alkylierungsagentien, wie Alkylhalogeniden (z.B. Methylbromid, Ethyljodid), Dialkylsulfaten (z.B. Dimethylsulfat, Diethylsulfat) oder Oxomiumsalzen (z.B. Trimethyloxoniumtetrafluorborat) gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Lösungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors bei -20°C bis 100°C , vorzugsweise bei 0 bis 100°C , drucklos oder unter Druck, kontinuierlich oder diskontinuierlich. Die Acylierung erfolgt mittels Acylhalogeniden (z.B. Acetylchlorid, Benzylchlorid) gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Lösungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors bei -20°C bis 150°C , vorzugsweise 20 bis 120°C , drucklos oder unter Druck, kontinuierlich oder diskontinuierlich.

Zur Herstellung der Salze löst man zweckmäßigerweise die Verbindungen der Formel I, in denen R^3 Wasserstoff ist, in einem organischen Lösungsmittel, z.B. Methanol, versetzt mit der ungefähr stöchiometrischen Menge Alkalialkoholat, z.B. Natriummethylat, Alkalihydroxid, z.B. Natriumhydroxid, oder einem gegebenenfalls alkylierten Ammoniumhydroxid, z.B. Ammoniumhydroxid und engt zur Trockene ein.

Die Ausgangsverbindungen können nach bekannten Methoden hergestellt werden. So erfolgt die Herstellung der phenoxysubstituierten Harnstoffe der Formel II beispielsweise nach der in der DE-OS 29 42 930 beschriebenen Verfahrensweise. Die Verbindungen der Formel III können nach literaturbekannten Methoden hergestellt werden (Angew. Chem. 89 (1977), 789).

Die folgenden Beispiele erläutern die Herstellung der Verbindungen der Formel I nach dem angegebenen Verfahren. Gewichtsteile verhalten sich zu Volumenteilen wie kg zu l.

Beispiel 1

Zu einer Suspension von 19,5 Gewichtsteilen N-3-(2'-Chlor-4'-trifluormethylphenoxy)-6-nitrophenyl-N'-methylharnstoff in 25 Volumenteilen absolutem Toluol fügt man eine Lösung von 6,4 Gewichtsteilen N-Chlorcarbonylisocyanat in 5 Volumenteilen absolutem Toluol zu. Die Reaktionsmischung wird erhitzt und zwei Stunden bei Rückflußtemperatur nachgerührt. Nach dem Abkühlen versetzt man die Reaktionslösung mit n-Pentan und saugt den gebildeten Niederschlag ab. Man erhält 19 Gewichtsteile (83 % d.Th.) 1-[3'-(2"-Chlor-4"-trifluormethylphenoxy)-6'-nitrophenyl]-3-methyl-1,3,5-triazin-2,4,6-(1H,3H,5H)-trion (Verbindung Nr. 1) vom Schmelzpunkt 208 bis 211°C.

Beispiel 2

Eine Lösung von 8 Gewichtsteilen der Verbindung Nr. 1 in 100 Volumenteilen Aceton wird zusammen mit 2,4 Gewichtsteilen Kaliumcarbonat und 2,2 Gewichtsteilen Dimethylsulfat zwei Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt. Die Reaktionsmischung wird abfiltriert, unter vermindertem Druck eingedampft, und der Rückstand wird aus Diiso-

propylether umkristallisiert. Man erhält 8 Gewichtsteile
(97 % d.Th.) 1-[3'-(2"-Chlor-4"-trifluormethylphenoxy)-
-6'-nitrophenyl]-3,5-dimethyl-1,3,5-triazin-2,4,6-
-(1H,3H,5H)-trion (Verbindung Nr. 2) vom Schmelzpunkt
5 200 bis 205°C.

Beispiel 3

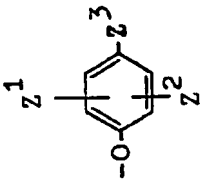
5 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 1 werden in 50 Volumen-
10 teilen absolutem Methanol suspendiert, mit 1,96 Gewichts-
teilen einer 30 %igen methanolischen Natriummethylatlö-
sung versetzt. Das Gemisch wird 30 Minuten bei Raumtempe-
ratur gerührt und die Reaktionsmischung wird unter ver-
mindertem Druck eingedampft. Man erhält 5 Gewichtsteile
15 (99 % d.Th.) des Natriumsalzes von 1-[3'-(2"-Chlor-4"-
-trifluormethylphenoxy)-6'-nitrophenyl]-3-methyl-1,3,5-
-triazin-2,4,6-(1H,3H,5H)-trion (Verbindung Nr. 3) vom
Schmelzpunkt 220 bis 225°C.

20 Entsprechend den o.a. Beispielen werden die in der fol-
genden Tabelle aufgeführten Verbindungen hergestellt.

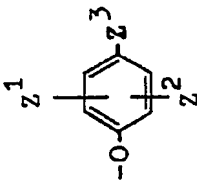
25

30

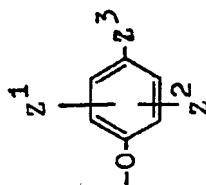
35

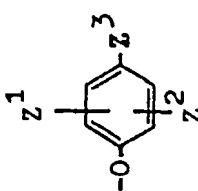
Nr.	Z ¹	Z ²	Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
4				CH ₃	H	100-105
5	"	"	NO ₂	C ₂ H ₅	H	
6	"	"	"	"	CH ₃	
7	"	"	"	"	Na	
8	"	"	"	"	C ₂ H ₅	
9	"	"	"	CH ₃	O	
10	"	"	"	"	" CCH ₃	
11	"	"	"	"	O	
12	"	"	"	1-C ₃ H ₇	" CC ₆ H ₅	218-220
13	"	"	"	"	NH ₄ ⁺	150-155
14	"	"	"	"	H	
15	"	"	"	n-C ₆ H ₁₃	CH ₃	
16	"	"	"	"	Na	
17	"	"	"	"	H	
18	"	"	"	CH ₂ -CH=CH ₂	CH ₃	
19	"	"	"	"	Na	

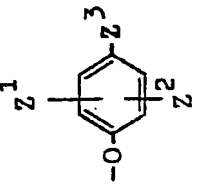
Nr.	30	25	20	15	10	5
Z ¹	Z ²	Z ³	Y	R ²	R ³	Fp [°Cl/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
20	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl		NO ₂	CH ₂ -CH=CH ₂	Na	
21	"	"	"	CH ₂ CH ₂ Cl	H	
22	"	"	"	"	CH ₃	
23	"	"	"	"	Na	
24	"	"	"	CH ₂ CH ₂ F	H	
25	"	"	"	"	CH ₃	
26	"	"	"	"	Na	
27	"	"	"	CH ₂ CH ₂ CN	H	
28	"	"	"	"	CH ₃	
29	"	"	"	"	Na	
30	"	"	"	CH ₂ CH ₂ OH	H	
31	"	"	"	"	CH ₃	
32	"	"	"	"	Na	
33	"	"	"	CH ₂ CH ₂ SH	H	
34	"	"	"	"	CH ₃	
35	"	"	"	"	Na	
36	"	"	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H	170° Zers.
37	"	"	"	"	CH ₃	C=O 1680-1700
38	"	"	"	"	Na	110-114

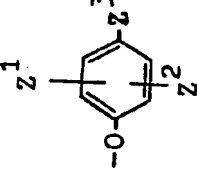
Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im IR-Spektrum
39	2-Chlor-4-trifluormethyl- phenyl	NO ₂	CH ₂ CH ₂ OC ₂ H ₅	H	
40	"	"	CH(C ₂ H ₅)CH ₂ OC ₂ H ₅	H	
41	"	"	"	CH ₃	
42	"	"	"	Na	
43	"	"	CH ₂ CH ₂ CH ₂ OC ₄ H ₉	H	100-110
44	"	"	"	CH ₃	C=O 1690-1710
45	"	"	"	Na	100-105
46	"	"	CH ₂ CH ₂ CH ₂ OCH ₂ (CH ₂) ₁₁ CH ₃	H	
47	"	"	"	CH ₃	
48	"	"	"	Na	
49	"	"	CH(CH ₃)CH ₂ OCH ₃	H	200-205
50	"	"	"	CH ₃	60- 65
51	"	"	"	Na	168-173
52	"	"	CH ₂ CH ₂ O-n-C ₃ H ₇	H	
53	"	"	"	CH ₃	
54	"	"	"	Na	
55	"	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₂ CH ₂ OH	H	
56	"	"	"	Na	

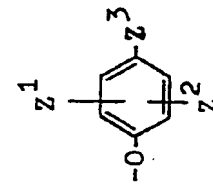
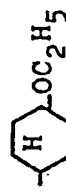
Nr.	30	25	20	15	10	5
Nr.	30	25	20	15	10	5
57	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	NO ₂	CH ₂ CH ₂ SCH ₃	H	170-174	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
58	"	"	"	CH ₃	60	
59	"	"	"	Na		
60	"	"	CH ₂ CH ₂ S-n-C ₈ H ₁₇	H		
61	"	"	"	CH ₃		
62	"	"	CH(CH ₃)CH ₂ SCH ₃	H		
63	"	"	"	CH ₃		
64	"	"	"	Na		
65	"	"	C(CH ₃) ₂ CH ₂ SC ₂ H ₅	H		
66	"	"	"	CH ₃		
67	"	"	CH ₂ CH ₂ CH ₂ SCH ₃	H		105-110
68	"	"	"	CH ₃		C=O 1690-1710
69	"	"	"	Na		115-120
70	"	"	CH ₂ CH ₂ N(CH ₃) ₂	H		
71	"	"	"	CH ₃		
72	"	"	"	Na		
73	"	"	4-Chlorphenyl	H		
74	"	"	"	CH ₃		

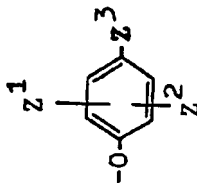


Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
75	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	NO ₂	3,4-Dichlorphenyl	H	95° Zers.
76	"	"	"	CH ₃	C=O 1690-1720
77	"	"	3-Trifluormethylphenyl	H	145° Zers.
78	"	"	"	CH ₃	C=O 1690-1710
79	"	"	4-Trifluormethoxyphenyl	H	
80	"	"	"	CH ₃	
81	"	"	3-Trifluormethylmercaptophenyl	H	
82	"	"	"	CH ₃	
83	"	"	4-Chlorbenzyl	H	
84	"	"	"	CH ₃	
85	"	"	2,4-Dichlorbenzyl	H	
86	"	"	"	CH ₃	
87	"	"	4-Methylbenzyl	H	
88	"	"	"	CH ₃	160-166
89	"	"	Cyclopentyl	H	C=O 1700-1710
90	"	"	"	CH ₃	125-130
91	"	"	"	Na	176-182
92	"	"	Cyclohexyl	H	

35	30	25	20	15	10	5
Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum	
93	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	NO ₂	Cyclohexyl	CH ₃	60-65	
94	"	"	"	Na	131-136	
95	"	Br	CH ₃	H		
96	"	"	"	CH ₃		
97	"	"	"	Na		
98	"	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H		
99	"	"	"	CH ₃		
100	"	"	"	Na		
101	"	CN	CH ₃	H		
102	"	"	"	CH ₃		
103	2-Brom-4-trifluormethyl-phenyl	NO ₂	CH ₃	H		
104	"	"	"	CH ₃		
105	"	"	"	Na		
106	2,6-Dichlor-4-trifluor-methylphenyl	"	"	H		
107	"	"	"	CH ₃		
108	"	"	"	Na		

Nr.	30	25	20	15	10	5
Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum	
109	2-Chlor-4-trifluormethoxy-phenyl	NO ₂	CH ₃	H		
110	"	"	"	CH ₃		
111	2-Chlor-4-trifluormethyl-mercapto-phenyl	"	"	H		
112	"	"	"	CH ₃		
113	2,4-Dichlorphenyl	"	"	H		224-229
114	"	"	"	CH ₃		
115	2,6-Dibromphenyl	"	"	H		223-225
116	"	"	"	CH ₃		
117	"	"	"	Na		
118	2,4,6-Trichlorphenyl	"	"	H		
119	3-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	"	"	H		
120	"	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H		
121	"	"	"	CH ₃		
122	2-Brom-4-trifluormethyl-phenyl	"	"	H		170-175
123	"	"	"	CH ₃		1,5403
124	"	"	"	Na		135-145

Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
125	2-Chlor-4-fluorphenyl	NO ₂	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H	
126	"	"	"	CH ₃	
127	2-Chlor-4-methylphenyl	"	"	H	
128	"	"	"	CH ₃	
129	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	"	CH ₂ CH ₂ S-C ₆ H ₅	H	217-222
130	"	"	"	CH ₃	55-61
131	"	"	"	Na	111-125
132	"	"	"	C ₂ H ₅	1,5732
133	"	"		H	155 Zers.
134	"	"	"	CH ₃	1,5146
135	"	"	"	C ₂ H ₅	1,5385
136	"	"	"	Na	140 Zers.
137	"	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	C ₂ H ₅	122-126
138	"	"	(CH ₂) ₃ OC ₄ H ₉	C ₂ H ₅	1,5325
139	"	"	Cyclopentyl	C ₂ H ₅	1,5468
140	"	"	Cyclohexyl	C ₂ H ₅	1,5298

Nr.		Y	R ²	R ³	Fp [°C]/n _D ²⁵ / Wellenlänge einer Bande im UR-Spektrum
141	2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl	NO ₂	(CH ₂) ₃ S-CH ₃	C ₂ H ₅	1,5597
142	2-Brom-4-trifluormethyl-phenyl	"	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	C ₂ H ₅	
143	2,4-Dichlorphenyl	"	"	H	C=O 1700-1710
144	"	"	"	CH ₃	C=O 1700-1715
145	"	"	"	C ₂ H ₅	1,5744
146	"	"	"	Na	122-128
147	2,4-Dibromphenyl	"	"	H	84- 90
148	"	"	"	CH ₃	1,5631

Die Verbindungen der Formel I bzw. die sie enthaltenden herbizide Mittel können beispielsweise in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen, auch hochprozentigen wäßrigen, öligen oder sonstigen Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln oder Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich ganz nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

Zur Herstellung von direkt versprühbaren Lösungen, Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen kommen Mineralölfractionen von mittlerem bis hohem Siedepunkt, wie Kerosin oder Dieselöl, ferner Kohlenteeröle sowie Öle pflanzlichen oder tierischen Ursprungs, aliphatische, cyclische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Benzol, Toluol, Xylol, Paraffin, Tetrahydronaphthalin, alkylierte Naphthaline oder deren Derivate, z.B. Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Cyclohexanol, Cyclohexanon, Chlorbenzol, Isophoron, stark polare Lösungsmittel, wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, Wasser, in Betracht.

Wäßrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten, Pasten oder netzbaren Pulvern (Spritzpulvern, Öldispersionen) durch Zusatz von Wasser bereitet werden. Zur Herstellung von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substanzen als solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel in Wasser homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung mit Wasser geeignet sind.

- Als oberflächenaktive Stoffe können Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von Ligninsulfonsäure, Naphthalinsulfonsäure, Phenolsulfonsäure, Alkylarylsulfonate, Alkylsulfate, Alkylsulfonate, Alkali- und Erdalkalisalze der Dibutylnaphthalinsulfonsäure, Laurylethersulfat, Fettalkoholsulfate, 5 fettsaure Alkali- und Erdalkalisalze, Salze sulfatierter Hexadecanole, Heptadecanole, Octadecanole, Salze von sulfatiertem Fettalkoholglykoether, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und Naphthalinderivaten mit 10 Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphthalinsulfonsäuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctylphenol, Octylphenol, Nonylphenol, Alkylphenolpolyglykoether, Tributylphenylpolyglykoether, Alkylarylpolyetheralkohole, 15 Isotridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether, ethoxyliertes Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoetheracetal, Sorbitester, Lignin, Sulfitablaugen und Methylcellulose verwendet werden.
- 20
- Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.
- 25
- Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate, können durch Bindung der Wirkstoffe an festen Trägerstoffen hergestellt werden. Feste Trägerstoffe sind Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, Kieselgele, Silikate, Talkum, Kaolin, Attaclay, Kalkstein, Kalk, Krei- 30 de, Bolus, Löss, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie z.B. Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, 35 Cellulosepulver und andere feste Trägerstoffe.

Die Formulierungen enthalten zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gewichtsprozent, Wirkstoff.

5 Beispiele für Formulierungen sind:

- 10 I. Man vermischt 90 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1 mit 10 Gewichtsteilen N-Methyl- α -pyrrolidon und erhält eine Lösung, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist.
- 15 II. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 38 werden in einer Mischung gelöst, die aus 80 Gewichtsteilen Xylol, 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-mono-ethanolamid, 5 Gewichtsteilen Calciumsalz der Dodecyl-benzolsulfonsäure und 5 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Ausgießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gewichtsprozent des Wirkstoffs enthält.
- 20
- 25 III. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 3 werden in einer Mischung gelöst, die aus 40 Gewichtsteilen Cyclohexanon, 30 Gewichtsteilen Isobutanol, 20 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gewichtsprozent des Wirkstoffs enthält.
- 30

- IV. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 3 werden in einer Mischung gelöst, die aus 25 Gewichtsteilen Cyclohexanol, 65 Gewichtsteilen einer Mineralölfraction vom Siedepunkt 210 bis 280°C und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gewichtsprozent des Wirkstoffs enthält.
- V. 80 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 37 werden mit 3 Gewichtsteilen des Natriumsalzes der Diisobutyl-naphthalin- α -sulfonsäure, 10 Gewichtsteilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfite-Ablauge und 7 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel gut vermischt und in einer Hammermühle vermahlen.
- VI. 3 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 36 werden mit 97 Gewichtsteilen feinteiligem Kaolin vermischt. Man erhält auf diese Weise ein Stäubemittel, das 3 Gewichtsprozent des Wirkstoffs enthält.
- VII. 30 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1 werden mit einer Mischung aus 92 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gewichtsteilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde, innig vermischt. Man erhält auf diese Weise eine Aufbereitung des Wirkstoffs mit guter Haftfähigkeit.

- VIII. 20 Teile des Wirkstoffs Nr.146 werden mit 2 Teilen
Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 8 Teilen
Fettalkohol-polyglykolether, 2 Teilen Natriumsalz
eines Phenol-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates und
5 68 Teilen eines paraffinischen Mineralöls vermischt.
Man erhält eine stabile ölige Dispersion.

- Die Applikation der Wirkstoffe bzw. der Mittel kann im
Vorauslaufverfahren oder bei Nachauflaufenwendung erfolgen.
10 Sind die Wirkstoffe für die Kulturpflanze weniger verträglich,
so können auch Ausbringungstechniken angewandt werden,
bei welchen die herbiziden Mittel mit Hilfe der Spritz-
geräte so gespritzt werden, daß die Blätter der empfind-
lichen Kulturpflanzen nach Möglichkeit nicht getroffen
15 werden, während die Wirkstoffe auf die Blätter darunter
wachsender unerwünschter Pflanzen oder die unbedeckte
Bodenfläche gelangen (post-directed, lay-by).

- Die Aufwandmengen an Wirkstoff betragen je nach Jahreszeit,
20 Zierpflanzen und Wachstumsstadium 0,025 bis 10 kg/ha und mehr,
vorzugsweise 0,1 bis 4,0 kg/ha, wobei sich die höheren Dosen
besonders zur totalen Bekämpfung von Vegetationen eignen.

- Die herbizide Wirkung der Verbindungen der Formel I bzw.
25 der sie enthaltenden herbiziden Mittel wird durch Gewächshausversuche gezeigt:

- Als Kulturgefäße dienen Plastikblumentöpfe mit 300 cm³ Inhalt und lehmigem Sand mit etwa 1,5 % Humus als Substrat.
30 Die Samen der Testpflanzen werden nach Arten getrennt flach eingesät. Unmittelbar danach erfolgt bei Vorauslaufbehandlung das Aufbringen der Wirkstoffe auf die Erdoberfläche.
Sie werden hierzu in Wasser als Verteilungsmittel suspendiert oder emulgiert und mittels fein verteilender Düsen
35 gespritzt. Nach dem Aufbringen der Mittel berechnet man

die Gefäße leicht, um Keimung und Wachstum in Gang zu bringen. Danach deckt man die Gefäße mit durchsichtigen Plastikhauben ab, bis die Pflanzen angewachsen sind. Diese Abdeckung bewirkt ein gleichmäßiges Keimen der Testpflanzen, sofern dies nicht durch die Wirkstoffe beeinträchtigt wird.

Zum Zwecke der Nachauflaufbehandlung zieht man die Testpflanzen je nach Wuchsform erst bis zu einer Wuchshöhe von 3 bis 15 cm an und behandelt sie danach. Die für die Nachauflaufanwendung benutzten Reispflanzen zieht man in einem mit Torfmull (peat) angereichertem Substrat an. Auch bei den Sojabohnen gibt man etwas Torfmull zu, um ein günstigeres Wachstum zu gewährleisten als in der oben beschriebenen Erde. Zur Nachauflaufbehandlung werden entweder direkt gesäte und in den gleichen Gefäßen aufgewachsene Pflanzen ausgewählt, oder sie werden erst als Keimpflanzen getrennt angezogen und einige Tage vor der Behandlung in die Versuchsgefäße verpflanzt. Bei Nachauflaufbehandlung unterbleibt die Abdeckung.

Die Versuchsgefäße werden im Gewächshaus aufgestellt, wobei für wärmeliebende Arten wärmere Bereiche (20 bis 35°C) und für solche gemäßigter Klimate 10 bis 25°C bevorzugt werden. Die Versuchsperiode erstreckt sich über 2 bis 4 Wochen. Während dieser Zeit werden die Pflanzen gepflegt, und ihre Reaktion auf die einzelnen Behandlungen wird ausgewertet. Bewertet wird nach einer Skala von 0 bis 100. Dabei bedeutet 0 keine Schädigung oder normaler Auflauf und 100 kein Aufgang der Pflanzen bzw. völlige Zerstörung zumindest der oberirdischen Teile.

Bei den Testpflanzen handelt es sich um *Abutilon theophrasti* (Chinesischer Hanf), *Amaranthus* spp. (Fuchsschwanz-Arten), *Arachys hypogaea* (Erdnüsse), *Chenopodium*

album (Weißer Gänsefuß), Datura stramonium (gemeiner Stechapfel), Echinochloa crus-galli (Hühnerhirse), Galeopsis tetrahit (gemeiner Holzzahn), Glycine max. (Sojabohnen), Oryza sativa (Reis), Sesbania exaltata (Turibaum), Sida spinosa, Sinapis alba (weißer Senf), Solanum nigrum (schwarzer Nachtschatten), Triticum aestivum (Weizen), Zea mays (Mais).

Vergleichsmittel ist die bekannte Verbindung 1-[4'-(2"-Chlor-4"-trifluormethylphenoxy)-phenyl]-3-methyl-1,3,5-triazin-2,4,6-trion (DE-OS 22 46 109).

Die Ergebnisse der Gewächshausversuche zeigen, daß beispielsweise die Verbindungen Nr. 1, 36 oder 37 bei Voraufanwendung von beispielsweise 3,0 kg Wirkstoff/ha eine gute herbizide Wirkung zeigt.

Bei der Prüfung auf selektive herbizide Eigenschaften bei Nachaufanwendung erweist sich die Verbindung Nr. 4 mit 0,5 kg Wirkstoff/ha als besser wirksam gegen das breitblättrige Beispielsunkraut Chenopodium als das Vergleichsmittel, ohne Sojabohnen- oder Maispflanzen zu schädigen.

Ebenso bekämpfen beispielsweise die Verbindungen Nr. 1, 3, 36, 37, 38, 44, 45, 69, 90, 93, 146 oder 148 bei 0,06, 0,125, 0,25 bzw. 0,5 kg Wirkstoff/ha im Nachaufverfahren eine Reihe breitblättriger unerwünschter Pflanzen, je nach Wirkstoff in Kulturen wie Reis, Weizen, Erdnüsse.

In Anbetracht der Verträglichkeit und der Vielseitigkeit der Applikationsmethoden können die erfindungsgemäßen Verbindungen noch in einer weiteren großen Zahl von Kulturpflanzen zur Beseitigung unerwünschter Pflanzen eingesetzt werden. In Betracht kommen beispielsweise folgende Kulturen:

	Botanischer Name	Deutscher Name
	<i>Allium cepa</i>	Küchenzwiebel
	<i>Ananas comosus</i>	Ananas
	<i>Arachis hypogaea</i>	Erdnuß
5	<i>Asparagus officinalis</i>	Spargel
	<i>Avena sativa</i>	Hafer
	<i>Beta vulgaris</i> spp. altissima	Zuckerrübe
	<i>Beta vulgaris</i> spp. rapa	Futterrübe
	<i>Beta vulgaris</i> spp. esculenta	Rote Rübe
10	<i>Brassica napus</i> var. napus	Raps
	<i>Brassica napus</i> var. napobrassica	Kohlrübe
	<i>Brassica napus</i> var. rapa	Weißer Rübe
	<i>Brassica rapa</i> var. silvestris	Rübsen
	<i>Camellia sinensis</i>	Teestrauch
15	<i>Carthamus tinctorius</i>	Saflor - Färberdistel
	<i>Carya illinoensis</i>	Pekannußbaum
	<i>Citrus limon</i>	Zitrone
	<i>Citrus maxima</i>	Pampelmuse
	<i>Citrus reticulata</i>	Mandarine
20	<i>Citrus sinensis</i>	Apfelsine, Orange
	<i>Coffea arabica</i> (<i>Coffea canephora</i> , <i>Coffea liberica</i>)	Kaffee
	<i>Cucumis melo</i>	Melone
	<i>Cucumis sativus</i>	Gurke
25	<i>Cynodon dactylon</i>	Bermudagrass
	<i>Daucus carota</i>	Möhre
	<i>Elaeis guineensis</i>	Ölpalme
	<i>Fragaria vesca</i>	Erdbeere
	<i>Glycine max</i>	Sojabohne
30	<i>Gossypium hirsutum</i> (<i>Gossypium arboreum</i> <i>Gossypium herbaceum</i> <i>Gossypium vitifolium</i>)	Baumwolle

	Botanischer Name	Deutscher Name
	<i>Helianthus annuus</i>	Sonnenblume
	<i>Helianthus tuberosus</i>	Topinambur
	<i>Hevea brasiliensis</i>	Parakautschukbaum
5	<i>Hordeum vulgare</i>	Gerste
	<i>Humulus lupulus</i>	Hopfen
	<i>Ipomoea batatas</i>	Süßkartoffeln
	<i>Juglans regia</i>	Walnußbaum
	<i>Lactuca sativa</i>	Kopfsalat
10	<i>Lens culinaris</i>	Linse
	<i>Linum usitatissimum</i>	Faserlein
	<i>Lycopersicon lycopersicum</i>	Tomate
	<i>Malus</i> spp.	Apfel
	<i>Manihot esculenta</i>	Maniok
15	<i>Medicago sativa</i>	Luzerne
	<i>Mentha piperita</i>	Pfefferminze
	<i>Musa</i> spp.	Obst- u. Mehlbanane
	<i>Nicotiana tabacum</i> (<i>N. rustica</i>)	Tabak
20	<i>Olea europaea</i>	Ölbaum
	<i>Oryza sativa</i>	Reis
	<i>Panicum miliaceum</i>	Rispenhirse
	<i>Phaseolus lunatus</i>	Mondbohne
	<i>Phaseolus mungo</i>	Erdbohne
25	<i>Phaseolus vulgaris</i>	Buschbohnen
	<i>Pennisetum glaucum</i>	Perl- oder Rohrkolbenhirse
	<i>Petroselinum crispum</i> spp. <i>tuberosum</i>	Wurzelpetersilie
	<i>Picea abies</i>	Rotfichte
30	<i>Abies alba</i>	Weißtanne
	<i>Pinus</i> spp.	Kiefer
	<i>Pisum sativum</i>	Gartenerbse
	<i>Prunus avium</i>	Süßkirsche
	<i>Prunus domestica</i>	Pflaume
35	<i>Prunus dulcis</i>	Mandelbaum

	Botanischer Name	Deutscher Name
	<i>Prunus persica</i>	Pfirsich
	<i>Pyrus communis</i>	Birne
	<i>Ribes sylvestre</i>	Rote Johannisbeere
5	<i>Ribes uva-crispa</i>	Stachelbeere
	<i>Ricinus communis</i>	Rizinus
	<i>Saccharum officinarum</i>	Zuckerrohr
	<i>Secale cereale</i>	Roggen
	<i>Sesamum indicum</i>	Sesam
10	<i>Solanum tuberosum</i>	Kartoffel
	<i>Sorghum bicolor</i> (s. <i>vulgare</i>)	Mohrenhirse
	<i>Sorghum dochna</i>	Zuckerhirse
	<i>Spinacia oleracea</i>	Spinat
	<i>Theobroma cacao</i>	Kakaobaum
15	<i>Trifolium pratense</i>	Rotklee
	<i>Triticum aestivum</i>	Weizen
	<i>Vaccinium corymbosum</i>	Kulturheidelbeere
	<i>Vaccinium vitis-idaea</i>	Preißelbeere
	<i>Vicia faba</i>	Pferdebohnen
20	<i>Vigna sinensis</i> (V. <i>unguiculata</i>)	Kuhbohne
	<i>Vitis vinifera</i>	Weinrebe
	<i>Zea mays</i>	Mais

25 Zur Verbreiterung des Wirkungsspektrums und zur Erzielung synergistischer Effekte können die neuen erfindungsgemäßen Verbindungen mit zahlreichen Vertretern anderer herbizider oder wachstumsregulierender Wirkstoffgruppen gemischt und gemeinsam ausgebracht werden. Beispielsweise kommen als

30 Mischungspartner Diazine, 4H-3,1-Benzoxazinderivate, Benzothiadiazinone, 2,6-Dinitroaniline, N-Phenylcarbamate, Thiolcarbamate, Halogencarbonsäuren, Triazine, Amide, Harnstoffe, Diphenylether, Triazinone, Uracile, Benzofuranderivate, Cyclohexan-1,3-dionderivate und andere in

35 Betracht.

Außerdem kann es von Nutzen sein, die neuen Verbindungen allein oder in Kombination mit anderen Herbiziden auch noch mit weiteren Pflanzenschutzmitteln gemischt gemeinsam auszubringen, beispielsweise mit Mitteln zur Bekämpfung von Schädlingen oder phytopathogenen Pilzen bzw. Bakterien. Von Interesse ist ferner die Mischbarkeit mit Mineralsalzlösungen, welche zur Behebung von Ernährungs- und Spurenelementmängeln eingesetzt werden. Es können auch nichtphytotoxische Öle und Ölkonzentrate zugesetzt werden.

15

20

25

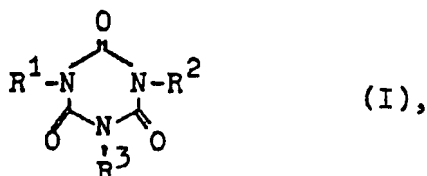
30

35

Patentansprüche

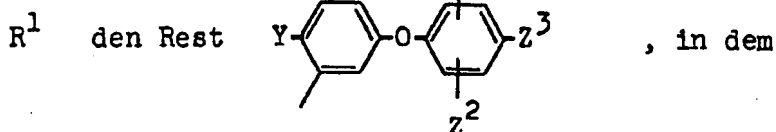
1. 1,3,5-Triazinone der Formel

5



10

in der



15

Z¹ und Z² jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Nitro, Cyano, Carboxyl, Alkyl, Halogenalkyl oder Alkoxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen,

20

Z³ Halogen, Nitro, Cyano, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylmercapto, Halogenalkylmercapto, Alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen und

25

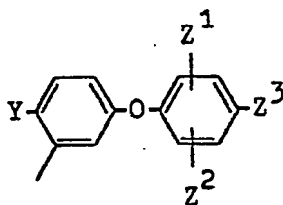
Y Wasserstoff, Halogen, Cyano oder Nitro bedeuten, R² Wasserstoff, einen gesättigten oder ungesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, einen durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Mercapto, Alkoxy oder Alkylmercapto mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, Phenylmercapto, Alkyl- oder Di-alkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in einer Alkylgruppe substituierten gesättigten,

35

unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest
 mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, einen gegebenen-
 falls durch Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen
 substituierten Cycloalkylrest mit 3 bis 7 Kohlen-
 5 stoffatomen, einen gegebenenfalls durch Halogen,
 Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlen-
 -stoffatomen, Nitro, Cyano, Halogenalkyl, Halogen-
 -alkoxy oder Halogenalkylmercapto mit jeweils
 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Phenyl-
 10 rest oder einen gegebenenfalls durch Halogen
 substituierten Benzylrest und
 R³ Wasserstoff, Alkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffato-
 men oder gegebenenfalls halogensubstituiertes
 Acyl mit bis zu 7 Kohlenstoffatomen, ein Alka-
 15 limetallion oder ein gegebenenfalls alkyliertes
 Ammoniumion

bedeuten.

- 20 2. 1,3,5-Triazinone der Formel I gemäß Anspruch 1, da-
durch gekennzeichnet, daß R¹ den Rest

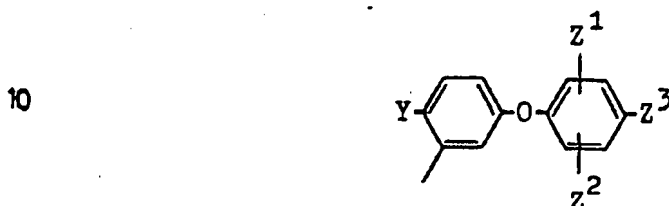


25

in dem Z¹ und Z² jeweils unabhängig voneinander Was-
 serstoff, Chlor, Brom oder Cyan, Z³ Chlor, Brom, Me-
 30 thyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylmercapto oder
 Trifluormethyl und Y Brom oder Nitro bedeuten,
 R² Alkyl, Halogenalkyl, Cyanoalkyl, Alkoxy- oder
 Alkylmercaptoalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlen-
 stoffatomen, Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoff-
 35 atomen, durch Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoff-

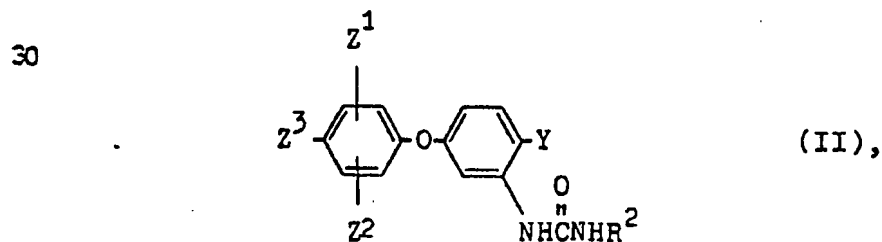
atomen oder Halogen substituiertes Phenyl oder durch Halogen substituiertes Benzyl und R^3 Wasserstoff, Methyl oder Natrium bedeuten.

- 5 3. 1,3,5-Triazinone der Formel I gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R^1 den Rest



15 in dem Z^1 und Z^2 jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom oder Cyan, Z^3 Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylmercapto oder Trifluormethyl und Y Nitro bedeuten, R^2 Methyl, 2-Chlorethyl, 3,4-Dichlorphenyl oder 2-Methoxyethyl, 20 und R^3 Wasserstoff, Methyl oder Natrium bedeuten.

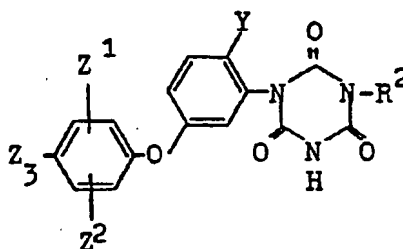
4. 1-[3'-(2"-Chlor-4"-trifluormethylphenoxy)-6'-nitrophenyl]-3-methyl-1,3,5-triazin-2,4,6-(1H,3H,5H)-trion.
- 25 5. Verfahren zur Herstellung von 1,3,5-Triazinonen der Formel I gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man einen phenoxysubstituierten Harnstoff der Formel



in der Z^1 , Z^2 , Z^3 , Y und R^2 die im Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben, mit einem substituierten Carbonylisocyanat der Formel



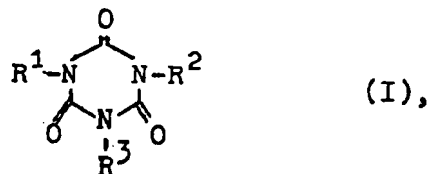
in der R^4 für Halogen, eine Alkoxygruppe oder eine Aryloxygruppe in einem inerten organischen Lösungsmittel, gegebenenfalls unter Zusatz eines Säureacceptors, bei Temperaturen zwischen -20 und $+180^\circ\text{C}$, zu einem 1,3,5-Triazinon der Formel



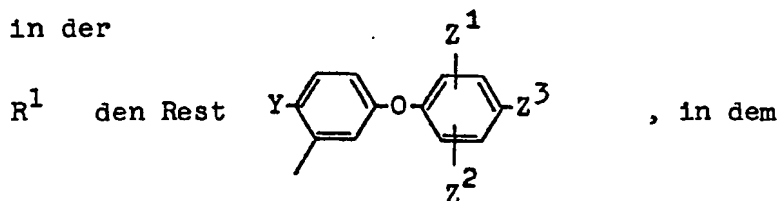
in der Z^1 , Z^2 , Z^3 , Y und R^2 die im Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben, umgesetzt und diese dann gegebenenfalls mit einem Acylhalogenid der Formel $R^3\text{COX}$ oder einem Alkylhalogenid der Formel $R^3\text{X}$ oder einem Dialkylsulfat der Formel $(R^3\text{O})_2\text{SO}_2$, wobei R^3 jeweils die im Anspruch 1 genannten Bedeutungen, ausgenommen Wasserstoff, hat und X für Halogen steht, acyliert oder alkyliert oder gegebenenfalls durch Umsetzung mit einem Alkalialkoholat, einem Alkalihydroxid oder einem gegebenenfalls alkylierten Ammoniumhydroxid in ein Salz der Formel I überführt.

6. Herbizid, enthaltend ein 1,3,5-Triazinon der Formel I gemäß Anspruch 1.

7. Herbizid, enthaltend inerte Zusatzstoffe und ein 1,3,5-Triazinon der Formel



in der



20

Z¹ und Z² jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Nitro, Cyano, Carboxyl, Alkyl, Halogenalkyl oder Alkoxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen,

25

Z³ Halogen, Nitro, Cyano, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylmercapto, Halogenalkylmercapto, Alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen und

30

Y Wasserstoff, Halogen, Cyano oder Nitro bedeuten,

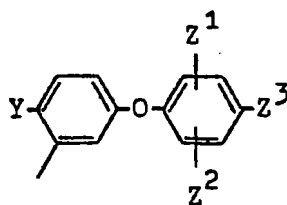
35

R² Wasserstoff, einen gesättigten oder ungesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen, einen durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Mercapto, Alkoxy oder Alkylmercapto mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, Phenylmercapto, Alkyl- oder Dialkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in einer Alkylgruppe substituierten gesättigten, unverzweigten oder verzweigten aliphatischen Rest mit bis zu

- 10 Kohlenstoffatomen, einen gegebenenfalls durch Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Cycloalkylrest mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, einen gegebenenfalls durch Halogen, Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Nitro, Cyano, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylmercapto mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituierten Phenylrest oder einen gegebenenfalls durch Halogen substituierten Benzylrest und
- R^3 Wasserstoff, Alkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls halogensubstituiertes Acyl mit bis zu 7 Kohlenstoffatomen, ein Alkalimetallion oder ein gegebenenfalls alkyliertes Ammoniumion

bedeuten.

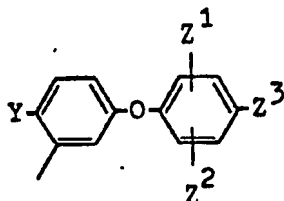
8. Herbizid, enthaltend inerte Zusatzstoffe und ein 1,3,5-Triazinon der Formel I gemäß Anspruch 1, wobei R^1 den Rest



- in dem Z^1 und Z^2 jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom oder Cyan, Z^3 Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylmercapto oder Trifluormethyl und Y Brom oder Nitro bedeuten, R^2 Alkyl, Halogenalkyl, Cyanoalkyl, Alkoxy- oder Alkylmercaptoalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, durch Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Halogen

substituiertes Phenyl oder durch Halogen substituiertes Benzyl und R^3 Wasserstoff, Methyl oder Natrium bedeuten.

- 5 9. Herbizid, enthaltend inerte Zusatzstoffe und ein 1,3,5-Triazinon der Formel I gemäß Anspruch 1, wobei R^1 den Rest



15

in dem Z^1 und Z^2 jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom oder Cyan, Z^3 Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylmercapto oder Trifluormethyl und Y Nitro bedeuten, R^2 Methyl, 2-Chlorethyl, 3,4-Dichlorphenyl oder 2-Methoxyethyl, und R^3 Wasserstoff, Methyl oder Natrium bedeuten.

20

10. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses, dadurch gekennzeichnet, daß man die unerwünschten Pflanzen und/ oder die von unerwünschtem Pflanzenwuchs freizuhaltende Fläche mit einer herbizid wirksamen Menge eines 1,3,5-Triazinons der Formel I gemäß Anspruch 1 behandelt.

25

30

35